

(12) NACH DEM VEREINBAR ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
15. Juli 2004 (15.07.2004)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
WO 2004/059770 A3

(51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: H01M 8/10, 4/92

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2003/014839

(22) Internationales Anmeldedatum:  
23. Dezember 2003 (23.12.2003)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:  
02029084.7 30. Dezember 2002 (30.12.2002) EP

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von  
US): UMICORE AG & CO. KG [DE/DE]; Rodenbacher  
Chaussee 4, 63457 Hanau-Wolfgang (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): RUTH, Karsten  
[DE/DE]; Streuweg 3, 63755 Alzenau (DE). SCHLEU-  
NUNG, Andreas [DE/DE]; Danziger Strasse 4, 63762

Grossostheim (DE). STARZ, Karl-Anton [DE/DE];  
Adolf-Reichwein-Strasse 12, 63517 Rodenbach (DE).  
LOPEZ, Marco [DE/DE]; Lupinenweg 18, 60433 Frank-  
furt (DE).

(74) Anwalt: VOSSIUS & PARTNER; Siebertstr. 4, 81675  
München (DE).

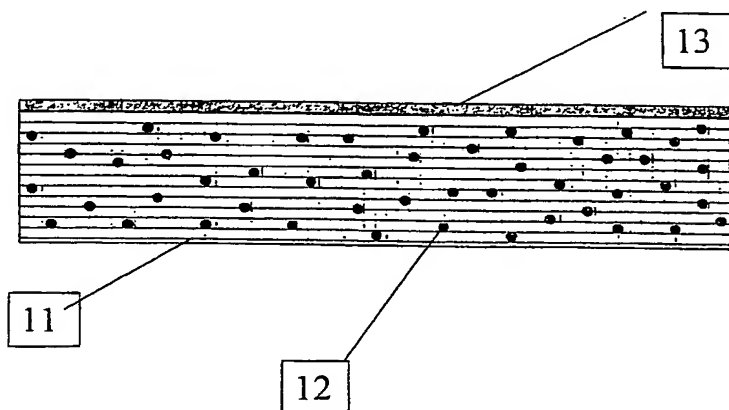
(81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT,  
AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR,  
CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE,  
GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR,  
KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK,  
MN, MW, MX, MZ, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT,  
RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR,  
TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) Bestimmungsstaaten (regional): ARIPO Patent (BW, GH,  
GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW),  
eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ,

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: GAS DIFFUSER SUBSTRATE CONTAINING CATALYSTS FOR FUEL CELLS, IN ADDITION TO A METHOD  
FOR THE PRODUCTION THEREOF

(54) Bezeichnung: KATALYSATORHALTIGES GASVERTEILERSUBSTRAT FÜR BRENNSTOFFZELLEN SOWIE  
VERFAHREN ZU DESSEN HERSTELLUNG



(57) Abstract: The invention relates to a gas diffuser substrate containing catalysts for fuel cells, especially low temperature fuel cells, such as PEMFC and DMFC. The gas diffuser substrate is used on the anode side of the fuel cell and contains catalyst components which result in the removal of carbon monoxide (in the PEMFC) and respectively the oxidation of methanol (in the DMFC). Said catalyst components are produced directly in porous substrate material by thermal treatment of suitable precursor compounds and are homogeneously distributed over the total volume of the gas diffuser substrate. As a result, the catalyst components have particularly high activity. The invention also relates to a method for the production of a gas diffuser substrate containing catalysts. The gas diffuser substrates used in membrane electrode units (MEEs) for low temperature fuel cells, especially for PEM-fuel cells, are operated with reformat gas containing CO. Said substrates are also used in direct-methanol-fuel cells (DMFC).

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

WO 2004/059770 A3



TM), europäisches Patent (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

**Veröffentlicht:**

- mit internationalem Recherchenbericht
- vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche geltenden Frist; Veröffentlichung wird wiederholt, falls Änderungen eintreffen

(88) Veröffentlichungsdatum des internationalen  
Recherchenberichts:

19. August 2004

*Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.*

**(57) Zusammenfassung:** Die Erfindung betrifft ein katalysatorhaltiges Gasverteilersubstrat für Brennstoffzellen, insbesondere Niedertemperatur-Brennstoffzellen, wie PEMFC und DMFC. Das Gasverteilersubstrat wird auf der Anodenseite der Brennstoffzelle eingesetzt und enthält Katalysatorkomponenten, die eine Entfernung von Kohlenmonoxid (in der PEMFC) beziehungsweise eine Oxidation von Methanol (in der DMFC) bewirken. Die Katalysatorkomponenten werden aus geeigneten Precursorverbindungen direkt im porösen Substratmaterial durch Temperaturbehandlung erzeugt und sind gleichmäßig über das gesamte Volumen des Gasverteilersubstrates verteilt. Die Katalysatorkomponenten weisen dadurch eine besonders hohe Aktivität auf. Weiterhin wird ein Verfahren zur Herstellung eines katalysatorhaltigen Gasverteilersubstrates beschrieben. Die Gasverteilersubstrate finden Verwendung in Membran-Elektroden-Einheiten (MEEs) für Niedertemperatur-Brennstoffzellen, insbesondere für PEM-Brennstoffzellen, die mit CO-haltigem Reformatgas betrieben werden. Sie können weiterhin in Direkt-Methanol-Brennstoffzellen (DMFC) eingesetzt werden.

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.

PCT/EP 03/14839

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**  
 IPC 7 H01M8/10 H01M4/92

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

**B. FIELDS SEARCHED**

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
 IPC 7 H01M

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 00/79628 A (HOOGERS GREGOR ;BALL SARAH CAROLINE (GB); HARDS GRAHAM ALAN (GB);) 28 December 2000 (2000-12-28) page 3, line 27 - page 4, line 15; claims 1-7,9,11-13; examples; table 1	1,2,4-7, 17-19
X	EP 0 606 051 A (PERMELEC SPA NORA ;PERMELEC ELECTRODE LTD (JP)) 13 July 1994 (1994-07-13) claims 1,2,5,13,14,16,17; examples	1,2,4,6
X	US 6 361 896 B1 (ROHLAND BERND ET AL.) 26 March 2002 (2002-03-26) column 3, line 13 - column 3, line 43; figure 1 column 4, line 12 - column 4, line 25; claims 1,2	1,2,4,6, 7,17,19
----- -/-		

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

**\* Special categories of cited documents :**

- \*A\* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- \*E\* earlier document but published on or after the international filing date
- \*L\* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- \*O\* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- \*P\* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- \*T\* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- \*X\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- \*Y\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
- \*&\* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

23 June 2004

Date of mailing of the international search report

01/07/2004

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
 NL - 2280 HV Rijswijk  
 Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
 Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Wiedemann, E

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.

PCT/EP 03/14839

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	DE 197 57 320 A (KERNFORSCHUNGSANLAGE JUELICH) 1 July 1999 (1999-07-01) column 2, line 43 - column 2, line 62; claims 1-6	1-4,6
X	US 4 828 941 A (STERZEL HANS-JOSEF) 9 May 1989 (1989-05-09) column 9, line 20 - column 10, line 67; claims 1,2,6,7; figure	1,2,4-6, 18,19
A	JP 09 129243 A (TOYOTA CENTRAL RES &DEV LAB INC) 16 May 1997 (1997-05-16) cited in the application abstract	1-19
A	EP 1 150 370 A (DMC2 DEGUSSA METALS CATALYSTS) 31 October 2001 (2001-10-31) claims	1-19

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 03/14839

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 0079628	A	28-12-2000	CA 2374238 A1 DE 60006818 D1 EP 1192681 A1 WO 0079628 A1 JP 2003502827 T	28-12-2000 08-01-2004 03-04-2002 28-12-2000 21-01-2003
EP 0606051	A	13-07-1994	JP 3142410 B2 JP 6235083 A JP 3236686 B2 JP 6192873 A CA 2111882 A1 EP 0606051 A1 FI 935774 A NO 934754 A	07-03-2001 23-08-1994 10-12-2001 12-07-1994 26-06-1994 13-07-1994 26-06-1994 27-06-1994
US 6361896	B1	26-03-2002	DE 19615562 C1 DE 59710284 D1 WO 9740542 A1 EP 0958629 A1 JP 2001502105 T	09-10-1997 17-07-2003 30-10-1997 24-11-1999 13-02-2001
DE 19757320	A	01-07-1999	DE 19757320 A1	01-07-1999
US 4828941	A	09-05-1989	DE 3618840 A1 EP 0248394 A2 JP 62296372 A	10-12-1987 09-12-1987 23-12-1987
JP 09129243	A	16-05-1997	NONE	
EP 1150370	A	31-10-2001	EP 1150369 A1 EP 1150370 A2 AT 244458 T BR 0101612 A CA 2345219 A1 DE 50002722 D1 DK 1150369 T3 ES 2197034 T3 JP 2002117865 A US 2002041992 A1	31-10-2001 31-10-2001 15-07-2003 27-11-2001 28-10-2001 07-08-2003 13-10-2003 01-01-2004 19-04-2002 11-04-2002

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 03/14839

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES  
IPK 7 H01M8/10 H01M4/92

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)  
IPK 7 H01M

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der Internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)  
EPO-Internal, WPI Data, PAJ

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	WO 00/79628 A (HOOGERS GREGOR ;BALL SARAH CAROLINE (GB); HARDS GRAHAM ALAN (GB);) 28. Dezember 2000 (2000-12-28) Seite 3, Zeile 27 - Seite 4, Zeile 15; Ansprüche 1-7,9,11-13; Beispiele; Tabelle 1	1,2,4-7, 17-19
X	EP 0 606 051 A (PERMELEC SPA NORA ;PERMELEC ELECTRODE LTD (JP)) 13. Juli 1994 (1994-07-13) Ansprüche 1,2,5,13,14,16,17; Beispiele	1,2,4,6
X	US 6 361 896 B1 (ROHLAND BERND ET AL) 26. März 2002 (2002-03-26) Spalte 3, Zeile 13 - Spalte 3, Zeile 43; Abbildung 1 Spalte 4, Zeile 12 - Spalte 4, Zeile 25; Ansprüche 1,2	1,2,4,6, 7,17,19

-/-

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

\*A\* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

\*E\* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

\*L\* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

\*O\* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

\*P\* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

\*T\* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

\*X\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

\*Y\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

\*Z\* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der Internationalen Recherche

23. Juni 2004

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

01/07/2004

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde  
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Wiedemann, E

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 03/14839

## C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	DE 197 57 320 A (KERNFORSCHUNGSANLAGE JUELICH) 1. Juli 1999 (1999-07-01) Spalte 2, Zeile 43 - Spalte 2, Zeile 62; Ansprüche 1-6	1-4,6
X	US 4 828 941 A (STERZEL HANS-JOSEF) 9. Mai 1989 (1989-05-09) Spalte 9, Zeile 20 - Spalte 10, Zeile 67; Ansprüche 1,2,6,7; Abbildung	1,2,4-6, 18,19
A	JP 09 129243 A (TOYOTA CENTRAL RES &AMP;DEV LAB INC) 16. Mai 1997 (1997-05-16) in der Anmeldung erwähnt Zusammenfassung	1-19
A	EP 1 150 370 A (DMC2 DEGUSSA METALS CATALYSTS) 31. Oktober 2001 (2001-10-31) Ansprüche	1-19

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 03/14839

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
WO 0079628	A	28-12-2000	CA 2374238 A1	28-12-2000
			DE 60006818 D1	08-01-2004
			EP 1192681 A1	03-04-2002
			WO 0079628 A1	28-12-2000
			JP 2003502827 T	21-01-2003
EP 0606051	A	13-07-1994	JP 3142410 B2	07-03-2001
			JP 6235083 A	23-08-1994
			JP 3236686 B2	10-12-2001
			JP 6192873 A	12-07-1994
			CA 2111882 A1	26-06-1994
			EP 0606051 A1	13-07-1994
			FI 935774 A	26-06-1994
			NO 934754 A	27-06-1994
US 6361896	B1	26-03-2002	DE 19615562 C1	09-10-1997
			DE 59710284 D1	17-07-2003
			WO 9740542 A1	30-10-1997
			EP 0958629 A1	24-11-1999
			JP 2001502105 T	13-02-2001
DE 19757320	A	01-07-1999	DE 19757320 A1	01-07-1999
US 4828941	A	09-05-1989	DE 3618840 A1	10-12-1987
			EP 0248394 A2	09-12-1987
			JP 62296372 A	23-12-1987
JP 09129243	A	16-05-1997	KEINE	
EP 1150370	A	31-10-2001	EP 1150369 A1	31-10-2001
			EP 1150370 A2	31-10-2001
			AT 244458 T	15-07-2003
			BR 0101612 A	27-11-2001
			CA 2345219 A1	28-10-2001
			DE 50002722 D1	07-08-2003
			DK 1150369 T3	13-10-2003
			ES 2197034 T3	01-01-2004
			JP 2002117865 A	19-04-2002
			US 2002041992 A1	11-04-2002